



(2)

PCT
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICH NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 5 : C07C 209/86, 209/36	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 94/06752 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 31. März 1994 (31.03.94)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP93/02335		(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).
(22) Internationales Anmeldedatum: 30. August 1993 (30.08.93)		(81) Bestimmungsstaaten: CA, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).
(30) Prioritätsdaten: P 42 30 098.3 9. September 1992 (09.09.92) DE		Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i>
(71) Anmelder (<i>für alle Bestimmungsstaaten ausser US</i>): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).		
(72) Erfinder; und		
(75) Erfinder/Anmelder (<i>nur für US</i>): ZARNACK, Uwe, Jens [DE/DE]; Ulitzhörn 2, D-25541 Brunsbüttel (DE). DIESSELKÄMPER, Bernd [DE/DE]; Amselweg 3, D-25709 Marne (DE). RINDFLEISCH, Hans-Nicolaus [DE/DE]; Lilienweg 8, D-25541 Brunsbüttel (DE).		

(54) Title: METHOD OF MANUFACTURING A RESIDUE-FREE 2,4/2,6-DIAMINOTOLUENE MIXTURE

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON RÜCKSTANDSFREIEM 2,4/2,6-DIAMINOTOLUOLGEMISCH

(57) Abstract

The method provides for continuous separation of residues from raw m-diaminotoluene mixtures (m-TDA; 2,4/2,6-diaminotoluene mixture) in the manufacture of residue-free 2,4/2,6-diaminotoluene mixtures (m-TDA). The use of the residue-free m-TDA mixtures is also disclosed. The residue-free m-toluylenediamine is prepared by nitration of toluene, hydrogenation of nitro compounds, separation of the water and solvent by distillation, and removal of the ortho-isomers from the toluylenediamine mixture by distillation. A sufficient quantity of 2,4- and 2,6-toluylenediamine (m-toluylenediamine, m-TDA) is distilled off from the residual product to leave tails having a 30 to 70 wt % residue concentration, an appropriate quantity of said tails being mixed with an adjuvant, inert to toluylenediamine and having a boiling point of over 290 °C, to give a residue concentration of 28 to 50 wt %. The tails mixed with the adjuvant are subjected to a further single or multiple stage distillation until a 2,4- and 2,6-toluylenediamine residue concentration of 1 to 5 wt % is reached, and the remaining residual tails, still liquid at low temperatures, are sluiced out.

(57) Zusammenfassung

Das Verfahren macht kontinuierliche Abrennung von Rückstand aus rohen m-Diaminotoluolgemischen (m-TDA; 2,4/2,6-Diaminotoluolgemisch möglich zur Herstellung von Rückstandsfreien 2,4/2,6-Diaminotoluolgemischen (m-TDA) und Verwendung der rückstandsfreien m-TDA-Gemische. Verfahren zur Herstellung von rückstandsfreiem m-Toluylendiamin durch Nitrierung von Toluol, Hydrierung der Nitroverbindungen, destillative Abrennung des Wassers und des Lösungsmittels, sowie destillative Entfernung der ortho-Isomeren aus dem Toluylendiamingemisch. Aus dem verbleibenden Rest wird so viel 2,4- und 2,6-Toluylendiamine (m-Toluylendiamin, m-TDA) abdestilliert, dass ein Sumpf mit einer Rückstandskonzentration von 30 bis 70 Gew.-% verbleibt, dieser Sumpf wird mit einem gegenüber Toluylendiaminen inertem Hilfsmittel mit einem Siedepunkt von > 290 °C in einer Menge abgemischt, dass sich eine Rückstandskonzentration von 28 bis 50 Gew.-% einstellt; dieser mit Hilfsmittel versetzte Sumpf wird solange einer weiteren ein- oder mehrstufigen Destillation unterzogen, bis eine Restkonzentration an 2,4- und 2,6-Toluylendiamin von 1 bis 5 Gew.-% im Sumpf erreicht ist, und der verbleibende restliche, auch bei niedrigen Temperaturen noch flüssige Sumpf wird ausgeschleust.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Code, die zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AT	Österreich	FI	Finnland	MR	Mauritanien
AU	Australien	FR	Frankreich	MW	Malawi
BB	Barbados	GA	Gabon	NE	Niger
BE	Belgien	GB	Vereinigtes Königreich	NL	Niederlande
BF	Burkina Faso	GN	Guinea	NO	Norwegen
BG	Bulgarien	GR	Griechenland	NZ	Neuseeland
BJ	Benin	HU	Ungarn	PL	Polen
BR	Brasilien	IE	Irland	PT	Portugal
BY	Belarus	IT	Italien	RO	Rumänien
CA	Kanada	JP	Japan	RU	Russische Föderation
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SD	Sudan
CG	Kongo	KR	Republik Korea	SE	Schweden
CH	Schweiz	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
CI	Côte d'Ivoire	LI	Liechtenstein	SK	Slowakischen Republik
CM	Kamerun	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CN	China	LU	Luxemburg	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LV	Lettland	TC	Togo
CZ	Tschechischen Republik	MC	Monaco	UA	Ukraine
DE	Deutschland	MG	Madagaskar	US	Vereinigte Staaten von Amerika
DK	Dänemark	ML	Mali	UZ	Usbekistan
ES	Spanien	MN	Mongolei	VN	Vietnam

5

10

Verfahren zur Herstellung von rückstandsfreiem 2,4/2,6-Diaminotoluolgemisch

15

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur kontinuierlichen Abtrennung von Rückstand aus rohen m-Diaminotoluolgemischen (m-TDA; 2,4/2,6-Diaminotoluolgemisch) zur Herstellung von rückstandsfreien 2,4/2,6-Diaminotoluolgemischen (m-TDA) sowie die Verwendung der rückstandsfreien m-TDA-Gemische.

Bei der großtechnischen Produktion von m-TDA durch Dinitrierung von Toluol und anschließender Hydrierung zu den Toluylendiaminen entstehen naturgemäß höhersiedende Nebenprodukte, u.a. Diphenylmethane, Diphenylamine, Acridine und Phenazine.

Das aus Toluol durch Dinitrierung und anschließende Hydrierung produzierte m-Toluylendiamingemisch enthält je nach Herstellungsverfahren zwischen 0,3 % und 2 % höhermolekulare Nebenkomponenten, im folgenden als TDA-Rückstand bezeichnet. Nach der destillativen Abtrennung

35

- 2 -

der Leichtsieder Lösemittel, Wasser und den ortho-
5 Isomeren (2,3- und 3,4-Diaminotoluolen) sind drei Ver-
fahren zur Weiterverarbeitung des rückstandshaltigen m-
TDA-Gemisches bekannt.

10 1. Das rückstandshaltige m-TDA-Gemisch wird direkt zu
m-Toluylendiisocyanat (TDI) phosgeniert. Die dabei
mitphosgenierten höhermolekularen Verbindungen wer-
den im Aufarbeitungsprozeß als TDI-Rückstand ausge-
schleust.

15 Vorteil: - Einsparung eines Verfahrensschrit-
tes

Nachteile: - Das Verfahren ist nur auf Flüssig-
phasenphosgenierung anwendbar
- Rückstand im m-TDA führt im Folge-
prozeß zur verstärkten Bildung hö-
hermolekularer Komponenten auf Ko-
sten der Ausbeute
- Störungen in der Rückstandsaustra-
gung des TDI-Prozesses

20 25 2. Das rückstandshaltige m-TDA-Gemisch wird in mit
30 bar Dampf beheizten Destillationsblasen über
eine Kolonne ausdestilliert. Damit der Sumpf unter
diesen Bedingungen (230°C) fließfähig ist, ver-
bleibt ein Anteil m-TDA > 5 % im Sumpf.

- 3 -

Vorteil: - Das rückstandsfreie m-TDA ist einsetzbar in der Gasphasenphosgenierung und als Verkaufsprodukt.

5

Nachteile: - Geringere Ausbeute als beim Verfahren unter Punkt 1.
10 - Entsorgung des TDA-Rückstandsgemisches (hochviskos) zur Verbrennung unter Verlust von m-TDA.

(3.)

Kontinuierliche Rückstandsabtrennung durch Resteindampfung des rückstandshaltigen m-TDA im Dünn-schichtverdampfer und Ausschleusung des Rückstandes mit einem m-TDA Anteil > 10 % als "Weichmacher".

15

Vorteil: - Das rückstandsfreie m-TDA ist einsetzbar in der Gasphasenphosgenierung und als Verkaufsprodukt.

20

Nachteile: - Geringere Ausbeute als beim Verfahren unter Punkt 1.
25 - Entsorgung des TDA-Rückstandsgemisches (hochviskos) zur Verbrennung unter Verlust von m-TDA.

25

Bei der destillativen Abtrennung des Rückstandes gemäß den Verfahren unter Punkt 2. und 3. fällt dieser als hochviskose Masse an, die - abhängig vom Restgehalt an m-TDA - bei Temperaturen unter 150°C glasartig erstarrt. Das im Rückstand verbleibende m-TDA geht zulasten der Ausbeute des Prozesses.

35

- 4 -

Aufgabe war es daher, ein Verfahren zur Verfügung zu
5 stellen, das es gestattet, rückstandsfreies m-TDA her-
zustellen und vollständig aus dem rohen m-TDA bzw. dem
Rückstand abzutrennen, ohne daß dabei die o.g. Nachteile
auftreten.

10 Diese Aufgabe konnte mit dem erfindungsgemäßen Verfahren
gelöst werden.

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstel-
lung von rückstandsfreiem m-Toluylendiamin durch Ni-
15 trierung von Toluol, Hydrierung der Nitroverbindungen,
destillative Abtrennung des Wassers und des Lösungs-
mittels, sowie destillative Entfernung der ortho-Iso-
meren aus dem Toluylendiamingemisch und anschließende
Destillation des verbleibenden Restes, welches dadurch
20 gekennzeichnet ist, daß die Destillation so durchgeführt
wird, daß so viel 2,4- und 2,6-Toluylendiamine (m-Toluy-
lendiamin, m-TDA) aus dem verbleibenden Rest abdestil-
liert werden, daß ein Sumpf mit einer Rückstandskonzen-
tration von 30 bis 70 Gew.-% verbleibt, dieser Sumpf mit
25 einem gegenüber Toluylendiaminen inerten Hilfsmittel mit
einem Siedepunkt von > 290°C in einer Menge abgemischt
wird, daß sich eine Rückstandskonzentration von 28 bis
50 Gew.-% einstellt, dieser mit Hilfsmittel versetzte
Sumpf solange einer weiteren ein- oder mehrstufigen
30 Destillation unterzogen wird, bis eine Restkonzentration
an 2,4- und 2,6-Toluylendiamin von 1 bis 5 Gew.-% im
Sumpf erreicht ist, und der verbleibende restliche, auch
bei niedrigen Temperaturen noch flüssige Sumpf ausge-
schieust wird.

- 5 -

Der Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens ist, daß
5 ohne großen technischen Aufwand fast das gesamte m-TDA
rückstandsfrei erhalten werden kann und daß außerdem der
verbleibende Rückstand selbst bei niedrigen Temperaturen
(ca. 100°C) ohne Probleme ausgeschleust werden kann.

10 Bevorzugt werden als Hilfsmittel eine oder mehrere Ver-
bindungen aus der Gruppe

- Destillationsrückstände aus der Ethylenglykolher-
stellung (EDR)
- 15 - Destillationsrückstände aus der Propylenglykolher-
stellung (PDR)
- Hochsiedende Polyether auf Basis Ethylenoxid
- Hochsiedende Polyether auf Basis Propylenoxid
- Hochsiedende Polyether auf Basis Mischpolymerisate
20 aus Ethylen- und Propylenoxid
- Hochsiedende Polyether auf Basis Polytetrahydro-
furane
- Hochsiedende Polyether auf Basis Mischpolymerisate
aromatischer Hydroxylverbindungen
- 25 - Hochsiedende Polyether auf Basis cycloaliphatischer
Oxoverbindungen
- Zucker, z.B. Melasse
- Hochsiedende Alkylaromaten

30 eingesetzt.

Vorzugsweise wird das erfindungsgemäße Verfahren konti-
nuierlich durchgeführt. Das rohe m-TDA (Toluylendiamin-
gemisch nach Abtrennung der Leichtsieder (Wasser, Lö-

- 6 -

sungsmittel) und der ortho-Isomeren) enthält normaler-
5 weise 0,3 bis 2 Gew.-% Rückstand. In einem ersten
Schritt wird soviel m-TDA (2,4/2,6-Toluylendiamin)
abdestilliert, daß anschließend die Konzentration des
Rückstands 30 bis 70 Gew.-% beträgt. Dieses aufkonzen-
trierte rohe m-TDA wird mit einem Hilfsstoff abgemischt
10 und einer zweiten Destillation unterzogen. Vorzugsweise
wird dabei bei Temperaturen zwischen 160 und 260°C,
besonders bevorzugt zwischen 190 und 220°C, und bei
Drucken zwischen 2 und 100 mbar, besonders bevorzugt
zwischen 5 und 40 mbar, gearbeitet. Nach der Destilla-
15 tion beträgt die Konzentration an m-TDA im Sumpf bevor-
zugt nur noch 1 bis 5 Gew.-%. Der Sumpf wird ausge-
schleust und hat vorzugsweise eine Viskosität bei 100°C
von \leq 150 mPas.

20 Die Erfindung soll anhand des nachfolgenden Beispiels
näher erläutert werden.

25

30

35

Beispiel

5

152,733 kg rohes m-TDA mit einem Rückstandsgehalt von 1,5 % werden kontinuierlich in eine Destillationskolonne die bei 206°C und 5 mbar betrieben wird, eingespeist. Als Destillat werden 148,649 kg m-TDA erhalten (Ausbeute 10 bezogen auf m-TDA: 98,81 %). Das aus der Destillationskolonne ablaufende Rückstandskonzentrat (4,0842 kg; Rückstandsgehalt: 56,1 %) wird mit 5,325 kg Ethylenglykoldestillationsrückstand abgemischt und kontinuierlich in eine zweite Kolonne, die bei 206°C und 5 mbar 15 betrieben wird, eingespeist. Als Destillat werden 1,724 kg m-TDA erhalten (Ausbeute bezogen auf m-TDA: 1,15 %). Die Gesamtausbeute an m-TDA beträgt 99,95 %.

Der aus der Kolonne ablaufende Rückstand enthält noch 20 0,05 % m-TDA (bezogen auf die Gesamtmenge m-TDA) und hat bei 80°C eine Viskosität von 50 mPas.

25

30

35

- 8 -

Patentansprüche

5

1. Verfahren zur Herstellung von rückstandsfreiem m-Toluylendiamin durch Nitrierung von Toluol, Hydrierung der Nitroverbindungen, destillative Abtrennung des Wassers und des Lösungsmittels sowie destillative Entfernung der ortho-Isomeren aus dem rückstandshaltigen Toluylendiamingemisch und anschließende Destillation des verbleibenden Restes, dadurch gekennzeichnet, daß die Destillation so durchgeführt wird, daß so viel 2,4-und 2,6-Toluylendiamine (m-Toluylendiamin, m-TDA) aus dem verbleibenden Rest abdestilliert werden, daß ein Sumpf mit einer Rückstandskonzentration von 30 bis 70 Gew.-% verbleibt, dieser Sumpf mit einem gegenüber Toluylendiaminen inertem Hilfsmittel, mit einem Siedepunkt von > 290°C in einer Menge abgemischt wird, daß sich eine Rückstandskonzentration von 28 bis 50 Gew.-% einstellt, dieser mit Hilfsmittel versehene Sumpf solange einer weiteren ein- oder mehrstufigen Destillation unterzogen wird, bis eine Restkonzentration an 2,4- und 2,6-Toluylendiamin von 1 bis 5 Gew.-% in Sumpf erreicht ist, und der verbleibende restliche, auch bei niedrigen Temperaturen noch flüssige Sumpf ausgeschleust wird.

10

15

20

25

30

35

2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Hilfsmittel eine oder mehrere Verbindungen aus der Gruppe

35

- 9 -

- Destillationsrückstände aus der Ethylen gly-
- 5 - Kolherstellung (EDR)
- Destillationsrückstände aus der Propylen gly-
- Kolherstellung (PDR)
- Hochsiedende Polyether auf Basis Ethylenoxid
- Hochsiedende Polyether auf Basis Propylenoxid
- 10 - Hochsiedende Polyether auf Basis Mischpolyme-
- risate aus Ethylen- und Propylenoxid
- Hochsiedende Polyether auf Basis Polytetrahy-
- drofurane
- Hochsiedende Polyether auf Basis Mischpolyme-
- 15 - risate aromatischer Hydroxylverbindungen
- Hochsiedende Polyether auf Basis cycloali-
- phatischer Oxoverbindungen
- Zucker, z.B. Melasse
- Hochsiedende Alkylaromaten

20 eingesetzt werden.

3. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
daß die Destillation des verbleibenden Restes ein-
oder mehrstufig erfolgt.

25

4. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
daß die Destillation bei Temperaturen von 160°C bis
260°C, bevorzugt bei Temperaturen von 190°C bis
30 220°C, und bei Drucken von 2 bis 100 mbar, bevor-
zugt 5 bis 40 mbar, durchgeführt werden.

- 10 -

5. Verwendung der nach den Ansprüchen 1 bis 4 her-
gestellten rückstandsfreien m-Toluylendiamine zur
Herstellung der entsprechenden Toluylendiisocya-
natgemische.

- 10 6. Verwendung der nach den Ansprüchen 1 bis 4 her-
gestellten rückstandsfreien m-Toluylendiamine zur
Herstellung von Polyurethanen.

15

20

25

30

35

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 93/02335

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 IPC 5 C07C209/86 C07C209/36

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 5 C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>KIRK-OTHMER 'Encyclopedia of Chemical Technology' 1978 , J.WILEY & SONS , NEW YORK ETC. see page 324 - page 327</p> <p>-----</p>	1-6

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *'E' earlier document but published on or after the international filing date
- *'L' document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

*'T' later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

*'X' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

*'Y' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

& document member of the same patent family

3

Date of the actual completion of the international search

Date of mailing of the international search report

19 November 1993

17. 12. 93

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentiaan 2
 NL - 2280 HV Rijswijk
 Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
 Fax (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

PAUWELS, G

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern als Aktenzeichen
PCT/EP 93/02335

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 5 C07C209/86 C07C209/36

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 5 C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	KIRK-OTHMER 'Encyclopedia of Chemical Technology' 1978 , J.WILEY & SONS , NEW YORK ETC. siehe Seite 324 - Seite 327 -----	1-6

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- * Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
 'A' Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
 'E' älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
 'L' Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
 'O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
 'P' Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- 'T' Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
 'X' Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfunderner Tätigkeit beruhend betrachtet werden
 'Y' Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfunderner Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
 '&' Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 19. November 1993	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 17. 12. 93
---	--

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2230 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

PAUWELS, G